

令和 5 年 5 月 24 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2021～2022

課題番号：21K20347

研究課題名（和文）パルス強磁場下における熱伝導率測定系の開発と量子スピン系の熱伝導に関する研究

研究課題名（英文）The study on the thermal conductivity of quantum spin magnets under pulse high magnetic field

研究代表者

野本 哲也（Nomoto, Tetsuya）

東京大学・物性研究所・特任研究員

研究者番号：00908650

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、これまで技術的困難さにより未開拓であった強磁場下における熱輸送現象の研究を展開するため、パルス強磁場下における熱伝導率測定装置の開発を行った。ヒートパルス法の原理に基づいた高速・高精度な測定システムを確立することに成功し、最大40Tの強磁場領域まで物質の熱伝導率を測定することが可能となった。また、本セットアップを用いて量子スピン物質であるSrCu₂(BO₃)₂に対する強磁場下熱伝導率測定を実施し、20T以上で起こる磁気構造の変化に起因した熱伝導率の減少を捉えることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

物質の相転移を利用した熱制御・スイッチング技術は、高効率な排熱の実現や熱を利用した発電など様々な領域に応用が可能であり盛んに研究されている。今回の開発により強磁場中で起こる相転移が熱輸送に与える影響を検証できるようになったことで、新たな熱デバイス材料の探求や特異的な熱輸送現象を示す現象の探求が可能になったという点で、その学術的・社会的意義は大きいと考えられる。

研究成果の概要（英文）：We constructed a new thermal conductivity measurement system that can be used in pulsed high magnetic fields up to 40 T. The system is based on the heat pulse method and enables us to perform highly accurate and quick thermal conductivity measurements in the high magnetic field region. By using this system, we measured the thermal conductivity of a quantum spin material, SrCu₂(BO₃)₂. We succeeded in observing a drastic reduction in thermal conductivity of SrCu₂(BO₃)₂ above 20T, which is attributed to the effect of field-induced transition in this material.

研究分野：固体物性

キーワード：熱伝導率 パルス強磁場 熱容量 量子スピン ヒートパルス法

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

熱伝導率は物質中の熱の伝わりやすさをあらわす、基礎学問的にも応用面からも重要な物理量である。熱伝導率の大きさは格子(フォノン)・電荷・スピンなどの状態を反映して決まるため、外場によってこれらの状態を制御することで熱伝導の制御が可能となる。これを応用すれば、外場による熱伝導のスイッチングや熱の整流効果などの新たな熱制御デバイスの開発に繋がると期待される。

本研究では精密制御が可能な外場である磁場を用いた熱伝導率の制御に注目した。磁場は電子スピンの状態を変化させることのできる外部パラメータであり、磁性体などの磁気状態を外場変化させることでスピンやフォノンの熱伝導率を制御できると期待される。特に特異な磁場-温度相図を有する量子スピン系では、磁場印加による相転移によって熱輸送特性の劇的な変化が観測できる可能性がある。しかし、磁性体の磁気状態を変化させるためには数十テスラを越えるような巨大な磁場が必要な場合が多い。このような強磁場下での熱伝導率測定は技術的に非常に困難であり、現在までのところ研究例は殆ど存在しない。従って、熱伝導率の磁場による制御の可能性を検証するためには、強磁場下での熱伝導率測定が可能な新しい測定系の開発が必要であった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、60T 級の強磁場の発生が可能なパルス強磁場下における熱伝導率測定装置を開発し、磁気状態の磁場変化に伴う熱伝導率の変化を観測することである。具体的には、ms オーダーの非常に短い磁場発生時間内に熱伝導率を測定可能な装置開発とその解析プログラムの構築を目標とした。また、作成した装置を強磁場で磁気転移を起こす量子スピン系に適用し、熱伝導率の変化を捉えられるかどうかを定性的・定量的に評価することを最終目的とした。

3. 研究の方法

(1)パルス強磁場下熱伝導率測定装置の開発

本研究では熱伝導率測定の手法として、高速測定が可能なパルスフラッシュ法を採用した。セットアップの概略図を図1に示す。これは、直方形に加工した試料の上面に温度計、裏側にヒーターを取り付け、ヒーターをパルス加熱した後の上面温度の時間変化から熱拡散率を、温度上昇幅から熱容量を計算し、これらの値から熱伝導率を計算する手法である。本セットアップでは Au-Ge 薄膜および Ni-Cr 薄膜を試料の面上に直接スパッタし、それぞれ温度計とヒーターとして利用することで、高速での熱応答を可能とした。また、東京大学物性研究所・国際超強磁場科学研究施設のロングパルスマグネットと補助磁場を発生させるミニマグネットシステムを組み合わせ発生させる 100ms 程度のフラットトップ磁場中で温度変化を追跡することで、強磁場下での高精度な熱伝導率測定の実現を目指した。

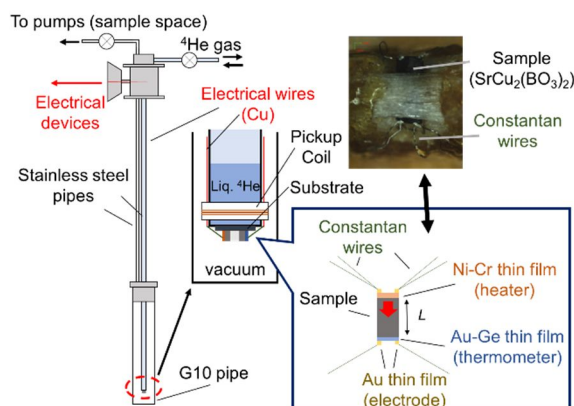


図1 パルス強磁場下熱伝導率測定装置の概略図

(2)シャストリー・サザーランド格子モデル物質・ $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の強磁場下熱伝導率測定

強磁場下での熱伝導率変化を観測する対象物質として、低温でスピン・ダイマー状態を基底状態に取る $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ を選んだ。本物質は低温における磁気状態の変化と熱伝導率が強く関連していることが知られており、また 20T 程度の強磁場でスピンギャップが潰れることで磁気状態が変化する。このことから、磁場中の熱伝導率測定の有効性を確かめる試料として適当であると考えた。(1)で述べたセットアップを本物質に適用し、40T までの熱伝導率とその温度依存性を測定した。得られた結果を定常磁場で測定された結果と比較することで開発した測定装置の妥当性を検証した。

4. 研究成果

本研究課題の主要な成果を以下に述べる。

(1)ゼロ磁場下測定を通じた装置評価

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の熱容量および熱伝導率をパルスフラッシュ法によって測定し、ゼロ磁場での文献値と比較した。Ni-Cr 薄膜に電圧を印加し、温度上昇およびその緩和を観測することに成功した(図2)。温度上昇とその緩和は 50ms 程度の非常に短い時間で観測されており、フラットトップ磁場の持続時間と比較して十分に短い。得られた測定データは、簡易的な解析法であるハー

フ・タイム法と熱逃げの影響まで評価できるカーブ・フィッティング法の二通りで解析した。両者の解析によって得られた熱拡散率の絶対値は非常に近い値を示したことから、本測定セットアップでは断熱条件がよく満たされており、パルスフラッシュ法の理想的な測定条件が実現していることを示している。また、ゼロ磁場の測定で得られた熱容量・熱伝導率の温度依存性は既報の結果を定量的によく再現した。この結果は、薄膜を利用したパルスフラッシュ法が高速・高精度の熱伝導率測定法として有効であることを示している。本手法は熱伝導率と熱容量を同時に測定することのできる手法としても有用であり、定常磁場下での測定にも応用が可能である。

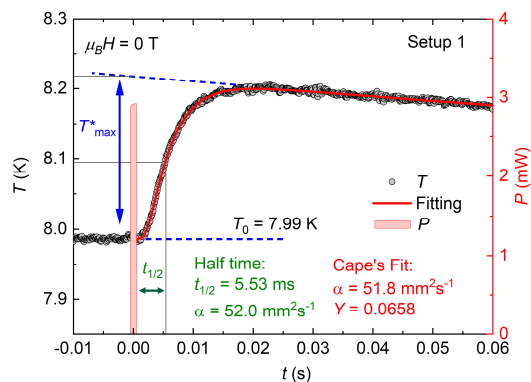


図 2 加熱後の試料温度の時間変化。赤線は理論によるフィッティング曲線。

(2)パルス磁場下での測定とその評価

(1)と同様のセットアップで 40T までのパルス

強磁場下の測定に挑戦した。測定結果を図 3(a)および(b)に示す。図 3(a)の青線が示すように、加熱中の磁場変化は $\pm 0.05\text{T}$ の範囲に収まっており、磁場変化による誤差は少なく抑えられている。時間変化はゼロ磁場での測定同様殆ど断熱的な時間変化を示しており、理論曲線がよくフィッティングできる。従って約 37T という巨大な磁場中でも本手法を用いた測定が可能であることが分かる。図 3(b)は各磁場で測定した熱伝導率の温度依存性を示している。ゼロ磁場のデータでは 10K 以下において熱伝導率の増大が観測される。これはスピン・ダイマーの形成によりスピン・フォノン散乱が要請されることによるフォノンの平均自由行程の増大と解釈でき、先行研究でも同様の傾向が観測されている。スピンギャップが抑制される 20T 以上ではゼロ磁場に見えていたピーク構造が抑制され、温度低下に伴って熱伝導率が単調に減少する挙動が観測された。これはスピンギャップが抑制されてフォノン散乱が増大したと考えられ、他のスピン・ダイマー系における磁場変化と類似した挙動である。

本研究では最大 39.3T までの熱伝導率測定に成功した。パルス磁場中の熱伝導率測定は世界で初めての例であり、最高到達磁場も世界最大クラスのものである。磁場中で磁気相転移を示す物質の熱伝導率測定法として広く活用できると考えられ、今後対象物質を他の磁性体にも拡大していくことを検討している。今回の測定ではサンプリング時間の問題で 6K 以上での測定に制限されているため、セットアップの改良やより高速動作する装置の導入などによって測定可能温度をより低温にまで拡張し、低エネルギー励起の検出などに応用できるように今後装置改良を行う予定である。また今回対象とした $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ はより磁場中で複雑な磁場 - 温度相図を示すことが知られているため、より低温までの測定を実施することで磁気状態と熱伝導率の関係をより詳細に調査したいと考えている。

本研究の内容はプレプリントとして公開し(T. Nomoto et al., "Simultaneous measurement of specific heat and thermal conductivity in pulsed magnetic fields", arXiv:2302.01627)、現在論文投稿中である。

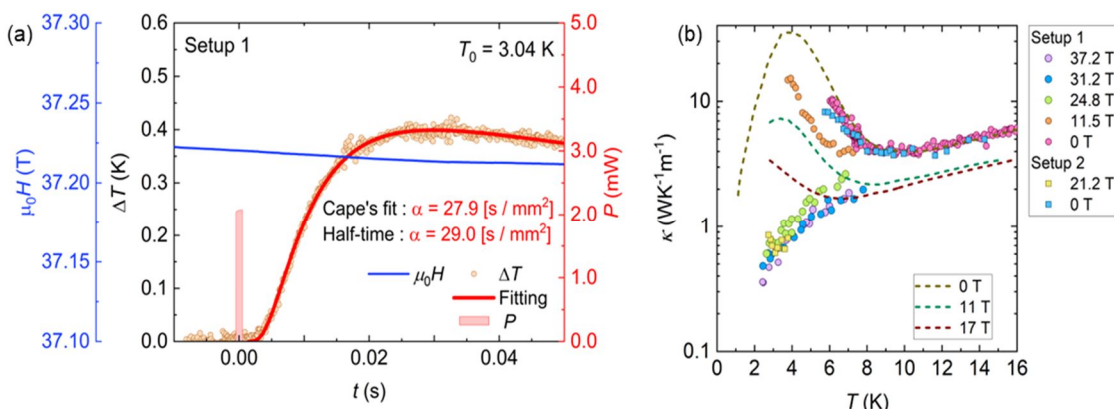


図 3 (a) パルス磁場中における加熱後の試料温度の時間変化。赤線は理論によるフィッティング曲線、青線は磁場を表す。(b)ハーフ・タイム法によって得られた熱伝導率の温度依存性。点線は先行研究の値を示す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Tetsuya Nomoto, Chengchao Zhong, Hiroshi Kageyama, Yoko Suzuki, Marcelo Jaime, Yoshiaki Hashimoto, Shingo Katsumoto, Naofumi Matsuyama, Chao Dong, Akira Matsuo, Koichi Kindo, Koichi Izawa, Yoshimitsu Kohama	4. 巻 -
2. 論文標題 Simultaneous measurement of specific heat and thermal conductivity in pulsed magnetic fields	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 arXiv	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.48550/arXiv.2302.01627	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tetsuya Nomoto, Shusaku Imajo, Hiroki Akutsu, Yasuhiro Nakazawa, Yoshimitsu Kohama	4. 巻 -
2. 論文標題 Correlation-driven organic 3D topological insulator with relativistic fermions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Research Square	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.21203/rs.3.rs-1345611/v1	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Nomoto Tetsuya, Yamashita Satoshi, Akutsu Hiroki, Nakazawa Yasuhiro	4. 巻 107
2. 論文標題 Magnetic field induced transition in the charge-glass former - (BEDT - TTF) 2 CsCo (SCN) 4	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 85121
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.107.085121	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nomoto Tetsuya, Yamashita Satoshi, Akutsu Hiroki, Nakazawa Yasuhiro, Kato Reizo	4. 巻 105
2. 論文標題 Systematic study on thermal conductivity of organic triangular lattice systems ' - X [Pd (dmit) 2] 2	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245133
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevb.105.245133	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 野本哲也, 山下智史, 坏広樹, 中澤康浩, 加藤礼三
2. 発表標題 '-X[Pd(dmit)2]2系の低温熱輸送特性の対イオン依存性
3. 学会等名 第77回日本物理学会年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 野本哲也, 山下智史, 坏広樹, 中澤康浩
2. 発表標題 Magnetic-field-induced transition of charge-glass former containing a magnetic transition metal
3. 学会等名 Multiscale Phenomena in Condensed Matter Online conference for young researchers (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 野本哲也, 坏広樹, 中澤康浩, 小濱芳允
2. 発表標題 Organic 3D topological insulator with massless Weyl fermions
3. 学会等名 Thermodynamic Properties of Nano-materials and Nano-structure Systems (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 野本哲也, 山下智史, 坏広樹, 中澤康浩, 小濱芳允
2. 発表標題 電荷ガラス形成体 -(BEDT-TTF)2CsM(SCN)4 (M=Zn, Co)の強磁場下物性
3. 学会等名 2021年度物性研究所短期研究会 「分子性固体研究の拡がり：新物質と新現象」
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------